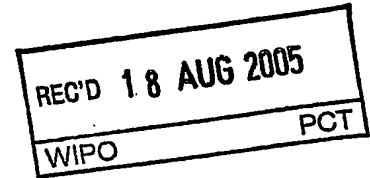


# 特許協力条約

PCT

特許性に関する国際予備報告 (特許協力条約第二章)

(法第 12 条、法施行規則第 56 条)  
[PCT36 条及び PCT 規則 70]



出願人又は代理人 の書類記号 T-536	今後の手続きについては、様式 PCT/IPEA/416 を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP2004/013977	国際出願日 (日.月.年) 16.09.2004	優先日 (日.月.年) 18.09.2003
国際特許分類 (IPC) Int.Cl. <sup>7</sup> C01B33/44, C08K9/04, C08L101/00		
出願人 (氏名又は名称) 帝人株式会社		

- この報告書は、PCT35 条に基づきこの国際予備審査機関で作成された国際予備審査報告である。  
法施行規則第 57 条 (PCT36 条) の規定に従い送付する。
- この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 3 ページからなる。
- この報告には次の附属物件も添付されている。
  - ☒ 附属書類は全部で 12 ページである。
    - ☒ 補正されて、この報告の基礎とされた及び／又はこの国際予備審査機関が認めた訂正を含む明細書、請求の範囲及び／又は図面の用紙 (PCT 規則 70.16 及び実施細則第 607 号参照)
    - ☐ 第 I 欄 4. 及び補充欄に示したように、出願時における国際出願の開示の範囲を超えた補正を含むものとこの国際予備審査機関が認定した差替え用紙
  - ☐ 電子媒体は全部で \_\_\_\_\_ (電子媒体の種類、数を示す)。  
配列表に関する補充欄に示すように、コンピュータ読み取り可能な形式による配列表又は配列表に関連するテーブルを含む。 (実施細則第 802 号参照)
- この国際予備審査報告は、次の内容を含む。
  - ☒ 第 I 欄 国際予備審査報告の基礎
  - ☐ 第 II 欄 優先権
  - ☐ 第 III 欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成
  - ☐ 第 IV 欄 発明の単一性の欠如
  - ☒ 第 V 欄 PCT35 条 (2) に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
  - ☐ 第 VI 欄 ある種の引用文献
  - ☐ 第 VII 欄 国際出願の不備
  - ☐ 第 VIII 欄 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 14.04.2005	国際予備審査報告を作成した日 29.07.2005		
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/JP) 郵便番号 100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目 4 番 3 号	特許庁審査官 (権限のある職員) 西山 義之 電話番号 03-3581-1101 内線 3416	4G	3129

様式 PCT/IPEA/409 (表紙) (2004 年 1 月)

## 第I欄 報告の基礎

1. この国際予備審査報告は、下記に示す場合を除くほか、国際出願の言語を基礎とした。

☐ この報告は、\_\_\_\_\_ 語による翻訳文を基礎とした。  
それは、次の目的で提出された翻訳文の言語である。

- ☐ PCT規則12.3及び23.1(b)にいう国際調査  
☐ PCT規則12.4にいう国際公開  
☐ PCT規則55.2又は55.3にいう国際予備審査

2. この報告は下記の出願書類を基礎とした。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に回答するために提出された差替え用紙は、この報告において「出願時」とし、この報告に添付していない。)

☐ 出願時の国際出願書類

☒ 明細書

第 1, 2, 6-10, 13, 15-18, 22-24, 26 ページ、出願時に提出されたもの  
 第 3-5, 11, 12, 14, 19-21, 25 ページ\*、17.05.2005 付けで国際予備審査機関が受理したもの  
 第 \_\_\_\_\_ ページ\*、\_\_\_\_\_ 付けで国際予備審査機関が受理したもの

☒ 請求の範囲

第 5, 7-9 項、出願時に提出されたもの  
 第 \_\_\_\_\_ 項\*、PCT19条の規定に基づき補正されたもの  
 第 1, 4, 6 項\*、17.05.2005 付けで国際予備審査機関が受理したもの  
 第 \_\_\_\_\_ 項\*、\_\_\_\_\_ 付けで国際予備審査機関が受理したもの

☒ 図面

第 1, 2 ページ/図、出願時に提出されたもの  
 第 \_\_\_\_\_ ページ/図\*、\_\_\_\_\_ 付けで国際予備審査機関が受理したもの  
 第 \_\_\_\_\_ ページ/図\*、\_\_\_\_\_ 付けで国際予備審査機関が受理したもの

☐ 配列表又は関連するテーブル  
配列表に関する補充欄を参照すること。

3. ☒ 補正により、下記の書類が削除された。

☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ  
☒ 請求の範囲 第 2, 3 項  
☐ 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図  
☐ 配列表(具体的に記載すること) \_\_\_\_\_  
☐ 配列表に関連するテーブル(具体的に記載すること) \_\_\_\_\_

4. ☐ この報告は、補充欄に示したように、この報告に添付されかつ以下に示した補正が出願時における開示の範囲を超えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c))

☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ  
☐ 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項  
☐ 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図  
☐ 配列表(具体的に記載すること) \_\_\_\_\_  
☐ 配列表に関連するテーブル(具体的に記載すること) \_\_\_\_\_

\* 4. に該当する場合、その用紙に“superseded”と記入されることがある。

第V欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、  
それを裏付ける文献及び説明

## 1. 見解

新規性(N)	請求の範囲	1, 4-9	有
	請求の範囲		無
進歩性(IS)	請求の範囲	1, 4-9	有
	請求の範囲		無
産業上の利用可能性(IA)	請求の範囲	1, 4-9	有
	請求の範囲		無

## 2. 文献及び説明(PCT規則70.7)

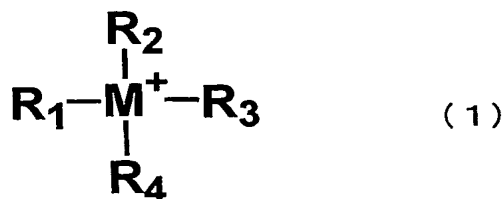
文献1:JP 9-309720 A(花王株式会社)1997.12.02

文献2:JP 2003-95640 A(帝人株式会社)2003.04.03

請求の範囲1, 4-9に記載された発明は、国際調査報告で引用された文献1, 2に対して新規性、進歩性を有する。文献1, 2には、特定の有機オニウムイオンによりイオン交換され、かつ所定の比表面積を有する層状珪酸塩が記載されておらず、しかもその点は当業者といえども容易に想到し得ないものである。

ライト、Na型フッ素テニオライト、Na型四珪素フッ素雲母、Li型四珪素フッ素雲母等の膨潤性合成雲母、バーミキュライト、フッ素バーミキュライト、ハロサイト、膨潤性マイカ等を挙げることができる。またこれらは、天然のもので、合成のものでも構わない。これらのうち、陽イオン交換容量などの点から、  
 5 モンモリロナイト、ヘクトライト等のスメクタイト系粘土鉱物、Li型フッ素テニオライト、Na型四珪素フッ素雲母等を好適に使用することができる。

本発明の層状珪酸塩はこうした層状珪酸塩を下記式(1)



10

式中、 $\text{R}_1$ 、 $\text{R}_2$ 、 $\text{R}_3$ 及び $\text{R}_4$ は、それぞれ独立に炭素数1～30の炭化水素基またはヘテロ原子を含む炭化水素基であり、  
 Mはリン原子であってホスフォニウムイオンであるか、Mは窒素原子であつ任意の $\text{R}_1$ 、 $\text{R}_2$ 、 $\text{R}_3$ 及び $\text{R}_4$ が環を形成したヘテロ芳香族イオンであつて、 $\text{R}_1$ 、 $\text{R}_2$ 、 $\text{R}_3$ 及び $\text{R}_4$ の少なくとも一部がイミド置換炭化水素基である。  
 15 で表される有機オニウムイオンによりイオン交換能対比50～100%イオン交換されたものである。

炭素数1～30の炭化水素基としては、アルキル基、および芳香族基を挙げることができる。アルキル基としては、炭素数1～18のアルキル基が好ましく、  
 20 メチル、エチル、n-プロピル、n-ブチル、n-ドデシル、n-トリデシル、n-テトラデシル、n-ペンタデシル、n-ヘキサデシル、n-ヘプタデシル、およびn-オクタデシルを好ましく例示することができる。また、芳香族基としては、フェニル基、ビフェニル基、ベンジル基、トシル基などを好ましく例示す

ることができる。またこれらの芳香族基は、それらの熱安定性に影響を及ぼさないメチル、エチル、弗素、塩素などのような置換基を有してもよい。

- また、Mがリン原子である有機ホスホニウムの具体例としてはテトラエチルホスホニウム、トリエチルベンジルホスホニウム、テトラブチルホスホニウム、テ  
5   トラオクチルホスホニウム、トリメチルデシルホスホニウム、トリメチルドデシ  
ルホスホニウム、トリメチルヘキサデシルホスホニウム、トリメチルオクタデシ  
ルホスホニウム、トリブチルメチルホスホニウム、トリブチルドデシルホスホニ  
ウム、トリブチルオクタデシルホスホニウム、トリオクチルエチルホスフォニウ  
ム、トリブチルヘキサデシルホスフォニウム、メチルトリフェニルホスホニウム、  
10   エチルトリフェニルホスホニウム、ジフェニルジオクチルホスホニウム、トリフ  
ェニルオクタデシルホスホニウム、テトラフェニルホスホニウム、およびトリブ  
チルアリルホスフォニウムなどが挙げられる。

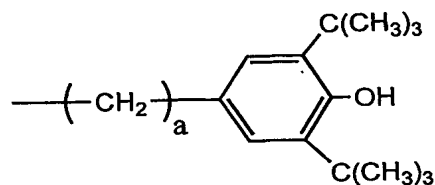
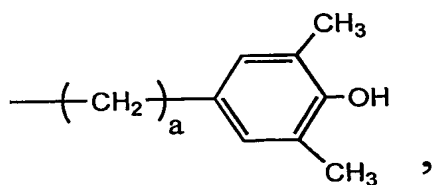
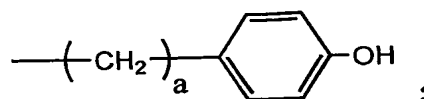
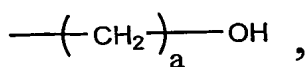
- さらに、上記式(1)においてMは窒素原子でかつ任意の $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$ 及び  
 $R_4$ が環を形成したヘテロ芳香族イオンであって、 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$ 及び $R_4$ の少な  
15   くとも一部はイミド置換炭化水素基である

以下にヘテロ原子を含む置換基を有する炭化水素基の例を列挙する。(ここで  
下記式中、a および b はそれぞれ独立に 1 以上 29 以下の整数であり、置換基中

5

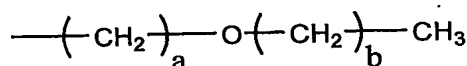
での炭素数が30以下になる整数である。)

ヒドロキシ置換炭化水素基

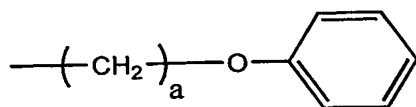


5

アルコキシ置換炭化水素基：

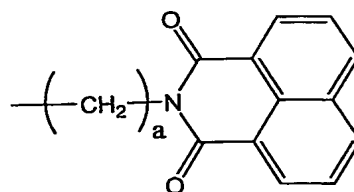
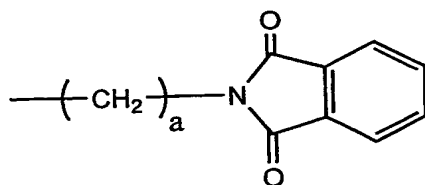


フェノキシ置換炭化水素基：



10

イミド置換炭化水素基：



- Mが窒素原子でかつ任意の $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$ 及び $R_4$ が環を形成しヘテロ芳香族  
 15 イオンとなる場合にはピリジン、メチルピリジン、エチルピリジン、ジメチルピ  
 リジン、ヒドロキシピリジン、ジメチルアミノピリジン等のピリジン誘導体、イ  
 ミダゾール、メチル

- 4'-ビフェニルジカルボン酸、2, 2'-ビフェニルジカルボン酸、4, 4'-ジフェニルエーテルジカルボン酸、4, 4'-ジフェニルメタンジカルボン酸、4, 4'-ジフェニルスルホンジカルボン酸、4, 4'-ジフェニルイソプロピリデンジカルボン酸、5-ナトリウムスルホイソフタル酸等の芳香族ジカルボン酸、シュウ酸、コハク酸、アジピン酸、セバシン酸、ドデカンジカルボン酸、オクタデカンジカルボン酸、マレイン酸及びフマル酸等の脂肪族ジカルボン酸、1, 4-シクロヘキサンジカルボン酸などの環状脂肪族ジカルボン酸などが挙げられる。ジオールとしては、エチレングリコール、1, 2-プロピレングリコール、1, 3-プロピレングリコール、1, 3-ブタンジオール、1, 4-ブタンジオール、2, 2-ジメチルプロパンジオール、ネオペンチルグリコール、1, 5-ペンタジオール、1, 6-ヘキサンジオール、1, 8-オクタンジオール、1, 10-デカンジオール、1, 4-シクロヘキサンジメタノール、1, 3-シクロヘキサンジメタノール、1, 2-シクロヘキサンジメタノール、トリメチレングリコール、テトラメチレングリコール、ペンタメチレングリコール、オクタメチレングリコール、ジエチレングリコール、ジプロピレングリコールなどの脂肪族ジオールや、ヒドロキノン、レゾルシノール、ビスフェノールA及び2, 2-ビス(2'-ヒドロキシエトキシフェニル)プロパン等のジフェノール類が挙げられる。ヒドロキシカルボン酸としては、p-ヒドロキシ安息香酸、p-ヒドロキシエトキシ安息香酸、6-ヒドロキシ-2-ナフトエ酸、7-ヒドロキシ-2-ナフトエ酸、4'-ヒドロキシ-ビフェニル-4-カルボン酸等の芳香族ヒドロキシカルボン酸などが挙げられる。

好ましいポリエステルの具体例としては、ポリエチレンテレフタレート(PE T)、ポリブチレンテレフタレート、ポリシクロヘキシレンジメチレンテレフタレート、ポリエチレン-2, 6-ナフトレート、ポリブチレンナフトレート、ポリエチレンイソフタレート-テレフタレート共重合体、p-ヒドロキシ安息香酸-6-ヒドロキシ-2-ナフトエ酸共重合体などが挙げられる。

ポリアミドとしては、ジカルボン酸及び/またはその誘導体とジアミンを重縮合したもの、あるいは、アミノカルボン酸からなるもの、あるいは、さらにこれ

らの共重合体を指す。ポリアミドを構成するカルボン酸成分としては、アジピン酸、セバシン酸、ドデカンジカルボン酸、オクタデカンジカルボン酸等の脂肪族ジカルボン酸、1, 4-シクロヘキサンジカルボン酸などの環状脂肪族ジカルボン酸、テレフタル酸、イソフタル酸、オルトフタル酸、2, 6-ナフタレンジカルボン酸、2, 7-ナフタレンジカルボン酸、1, 5-ナフタレンジカルボン酸、4, 4'-ビフェニルジカルボン酸、2, 2'-ビフェニルジカルボン酸、4, 4'-ジフェニルエーテルジカルボン酸、4, 4'-ジフェニルメタンジカルボン酸、4, 4'-ジフェニルスルホンジカルボン酸等の芳香族ジカルボン酸などが挙げられる。ジアミンとしては、ブタンジアミン、ペンタンジアミン、ヘキサンジアミン、ヘプタンジアミン、ノナンジアミン、ドデカンジアミン等の脂肪族ジアミン、トリメチル-1, 6-ヘキサンジアミン等の置換基を有する脂肪族ジアミン、m-フェニレンジアミン、p-フェニレンジアミン、1, 4-ジアミノナフタレン、1, 5-ジアミノナフタレン、1, 8-ジアミノナフタレン、2, 6-ジアミノナフタレン、2, 7-ジアミノナフタレン、3, 3'-ジアミノビフェニル、4, 4'-ジアミノビフェニル、4, 4'-ジアミノベンゾフェノン、3, 3'-ジアミノジフェニルエーテル、3, 4'-ジアミノジフェニルエーテル、4, 4'-ジアミノジフェニルエーテル、3, 3'-ジアミノジフェニルメタン、4, 4'-ジアミノジフェニルメタン、3, 3'-ジアミノジフェニルスルホン、4, 4'-ジアミノジフェニルスルホン、3, 3'-ジアミノジフェニルスルフィド、4, 4'-ジアミノジフェニルチオエーテル、1, 3-ビス(3-アミノフェノキシ)ベンゼン、1, 3-ビス(4-アミノフェノキシ)ベンゼン、1, 4-ビス(3-アミノフェノキシ)ベンゼン、1, 4-ビス(4-アミノフェノキシ)ベンゼン、1, 1-ビス(4-アミノフェニル)エタン、2, 2-ビス(4-アミノフェニル)プロパン等の芳香族ジアミンが挙げられる。これらは単独で用いてもよいが複数用いてもよい。アミノカルボン酸としては、6-アミノヘキサ酸、12-アミノドデカン酸等の脂肪族アミノカルボン酸や、p-アミノ安息香酸、6-アミノ-2-ナフトエ酸、7-アミノ-2-ナフトエ酸等の芳香族アミノカルボン酸などが挙



トリメチルー1, 6-ヘキサンジアミン等の置換基を有する脂肪族ジアミンが挙げられる。これらは単独で用いてもよいが複数用いてもよい。アミノジカルボン酸としては、6-アミノヘキサンジカルボン酸、12-アミノドデカンジカルボン酸等の脂肪族アミノジカルボン酸が挙げられる。

- 5 好ましいポリイミドの具体例としては、パラドデカメチレンピロメリットイミド、パラウンデカメチレンピロメリットイミド等を例示することができる。また、市販品としては、商品名ウルテム（ポリエーテルイミド）なども好ましいものとして例示することができる。

- ポリカーボネートとしては、各種のビスフェノール類からなるポリカーボネート
- 10 トを例示することができる。ビスフェノール類としては、ビス（4-ヒドロキシフェニル）メタン、2, 2-ビス（4-ヒドロキシフェニル）プロパン、1, 1-ビス（4-ヒドロキシフェニル）エタン、2, 2-ビス（4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル）プロパン、2, 2-ビス（4-ヒドロキシフェニル）ヘプタン、2, 2-ビス（4-ヒドロキシ-3, 5-ジクロロフェニル）プロパン、2,
- 15 2-ビス（4-ヒドロキシ-3, 5-ジブromoフェニル）プロパン、ビス（4-ヒドロキシフェニル）フェニルメタン、4, 4'-ジヒドロキシフェニルー1, 1'-m-ジイソプロピルベンゼン、4, 4'-ジヒドロキシフェニルー9, 9-フルオレン、などのビス（4-ヒドロキシアリール）アルカン類、1, 1-ビス（4-ヒドロキシフェニル）シクロペンタン、1, 1-ビス（4-ヒドロキシフェニル）シクロヘキサン、1-メチルー1-（4-ヒドロキシフェニル）-4-
- 20 -（ジメチルー4-ヒドロキシフェニル）メチルーシクロヘキサン、4-[1-[3-（4-ヒドロキシフェニル）-4-メチルシクロヘキシル]-1-メチルエチル]-フェノール、4, 4'-[1-メチルー4-（1-メチルエチル）-1, 3-シクロヘキサンジイル]ビスフェノール、2, 2, 2', 2'-テトラ
- 25 ヒドロ -3, 3, 3', 3'-テトラメチルー1, 1'-スピロビス-[1H-インデン]-6, 6'-ジオール、などのビス（ヒドロキシアリール）シクロアルカン類、ビス（4-ヒドロキシフェニル）エーテル、ビス（4-ヒドロキシ-3, 5-ジクロロフェニル）エーテル、4, 4'-ジヒドロキシ-3, 3'-

処理の温度としては樹脂のガラス転移点以上、融点以下が好ましい。さらに好適な温度は得られたフィルムの結晶化温度と得られたフィルムの物性などを勘案して決定される。

## 5 発明の効果

本発明のイオン交換された層状珪酸塩は熱可塑性樹脂組成物に好適に分散可能である。また本発明の熱可塑性樹脂組成物は、層状珪酸塩の分散性が高く、耐熱性、ガスバリア性、難燃性、弾性、靱性等に優れ、種々の成形体、繊維、フィルムとして使用できる。

10

### 実施例

以下に実施例により本発明を詳述する。但し、本発明はこれら実施例に何ら制限されるものではない。

#### (1) 層状珪酸塩：

- 15 モンモリロナイト（クニミネ工業（株）製 クニピア（ナトリウム交換容量109 meq/100 g）を使用した。層間距離は12.6 Åだった。  
フルオロマイカF（コープケミカル（株）製 ナトリウム交換容量120 meq/100 g）を使用した。層間距離は9.8 Åだった。

- (2) カチオン交換率：(株) リガク製示差熱天秤TG8120を用いて空気  
20 雰囲気下20°C/minで800°Cまで加熱した際の重量減少率から次式を用いて求めた。

$$\text{陽イオン交換率 (\%)} = \{W_f / (1 - W_f)\} / (M_{org} / M_{si}) \times 100 \quad (2)$$

(W<sub>f</sub>は20°C/minの昇温速度で120°Cから800°Cまで測定した層状珪

25

酸塩の示差熱天秤による重量減少率、 $M_{org}$ は該ホスホニウムイオンの分子量、 $M_{si}$ は層状珪酸塩の陽イオン部分における1電荷あたりの分子量を表す。層状珪酸塩の陽イオン部分における1電荷あたりの分子量は、層状珪酸塩の陽イオン交換容量(単位： $eq/g$ )の逆数で算出される値である。)

- 5 (3) 樹脂組成物中の熱可塑性樹脂と層状珪酸塩の無機成分との重量比：

(株) リガク製示差熱天秤TG8120を用いて空気雰囲気下 $20^{\circ}C/min$ で $800^{\circ}C$ まで加熱した際の重量減少率から求めた。

(4) 熱分解温度：(株) リガク製示差熱天秤TG8120を用いて窒素中で $20^{\circ}C/min$ で $800^{\circ}C$ まで加熱した際の5重量%重量減少した温度を求めた。

- 10 (5) 層状珪酸塩の層間距離および平均層数：(株) リガク製粉末X線回折装置RAD-Bを用いて回折ピーク位置から算出した。また、Scherrer定数は、0.9として計算した。

(6) 還元粘度( $\eta_{sp}/C$ )：還元粘度はフェノール/テトラクロロエタン(重量比4：6)の溶液を使用し、濃度  $1.2g/dL$  温度 $35^{\circ}C$ で測定した。

- 15 (7) 比表面積：比表面積は、QUANTUM CHROME社製NOVA1200において $N_2$ ガスを用いて測定し、サンプルの重量で除して求める。

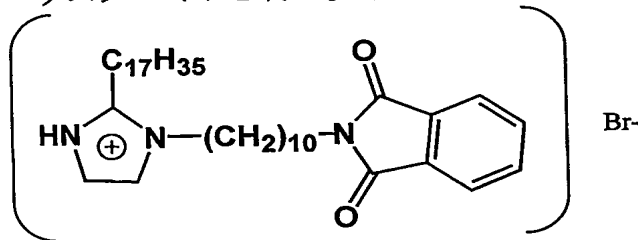
#### 参考例1：N-(10-ブロモデシル) フタルイミドの合成

- 20 フラスコにフタルイミドカリウム85重量部、1, 10-ジブロモデカン1008重量部、ジメチルホルムアミド(十分脱水したもの) 430重量部を入れ、攪拌し、 $100^{\circ}C$ で20時間加熱した。加熱後、揮発性成分を全て除去し、残渣をキシレンで抽出した。抽出した溶液から揮発性成分を留去し、残渣を室温で放置することでN-(10-ブロモデシル) フタルイミドの結晶を得た。

- 25 参考例2：1-[10-(N-デシルフタルイミド)]-2-ヘプタデシルイミダゾリウムブロミドの合成

2-ヘプタデシルイミダゾール20重量部、参考例1で得られたN-(10-ブロモデシル) フタルイミド24重量部を攪拌し、約 $100^{\circ}C$ で8~1

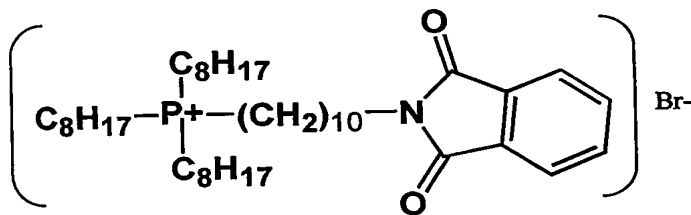
0 h 攪拌反応し 1-[10-(N-デシルフタルイミド)]-2-ヘプタデシルイミダゾリウムブロミドを得た。(下記式)



5 参考例 3 : 10-(N-デシルフタルイミド)トリオクチルホスホニウムブロミドの合成

フラスコにトリオクチルホスフィン 20 重量部、参考例 1 で得られた N-(10-ブロモデシル) フタルイミド 20 重量部を入れ攪拌し、約 100℃ で 8-10 h 攪拌反応し、10-(N-デシルフタルイミド) トリオクチルホスホニウムブロミド

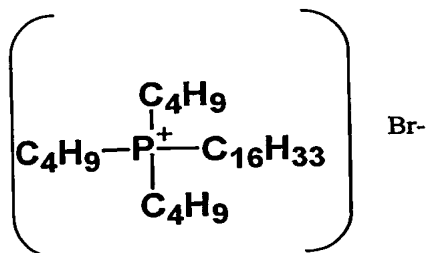
10 を得た。(下記式)



実施例 1 : カチオン交換された層状珪酸塩の合成

フラスコにクニピア F 100 重量部、水 3000 重量部を入れ、80℃ で加熱

15 攪拌した。ここに日本化学製 PX 416 (下記式)



を 83 重量部を水 300 重量部で溶解させた溶液を加え、さらに 80℃ で 3 時間攪拌した。混合物から固体を濾別し、メタノールで 3 回、水で 3 回洗浄したのち、

表 3

		実施例7	実施例8	実施例9	実施例10
樹脂		ポリ(エチレン ナフタレート)	ポリ(エチレン ナフタレート)	ポリ(エチレン ナフタレート)	ポリ(エチレンナ フタレート)
還元粘度	$\eta_{sp}/C$	0.64	0.63	0.62	0.64
層状珪酸塩		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4
無機含有量	%	2%	2	2	2
融点	°C	267	268	270	270
層間距離	nm	2.7	2.7	2.5	2.3
平均層数	-	4.3	4.4	4.7	4.5

表 4

		実施例11	実施例12	実施例13
樹脂		ポリ(エチレンナ フタレート)	ポリ(エチレンナ フタレート)	ポリカーボネ ート
還元粘度	$\eta_{sp}/C$	0.64	0.63	0.60
層状珪酸塩		実施例5	実施例6	実施例6
無機含有量	%	2	2	2
融点	°C	269	267	124
層間距離	nm	2.5	2.7	2.3
平均層数	-	4.3	4.2	4.9

#### 5 実施例14、15：フィルムの作成

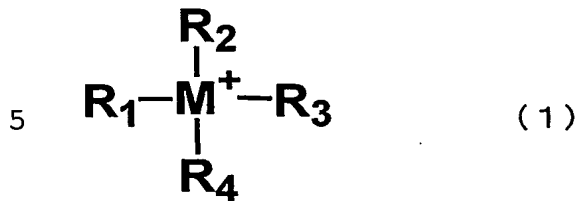
実施例7で得られたストランド状ペレットを170℃で5時間乾燥後、押出機ホッパーに供給し、熔融温度300℃で熔融し、1.3mmのスリット状ダイを通して表面温度80℃の回転冷却ドラム上に押出し、未延伸フィルムを得た。このようにして得られた未延伸フィルムを温度150℃でMD×TD=3.0×3.0倍および4.0×4.0倍に延伸し続いて厚み15μmの二軸延伸フィルムを得た。さらに得られた二軸延伸フィルムを205℃で1分熱固定し、ポリエチレンナフタレート/層状珪酸塩コンポジットフィルムを得た。得られたフィルムのヤング率はMD方向でそれぞれ7.1GPaおよび8.7GPaであった。

#### 15 比較例1

凍結乾燥を150℃で真空乾燥に変えた以外は実施例1と同様に層状珪酸塩を得た。このものの比表面積を測定したところ1.70m<sup>2</sup>/gであった。

## 請 求 の 範 囲

1. ~~(補正後)~~ 下記式 (1)



式中、 $\text{R}_1$ 、 $\text{R}_2$ 、 $\text{R}_3$ 及び $\text{R}_4$ は、それぞれ独立に炭素数1～30の炭化水素基またはヘテロ原子を含む炭化水素基であり、

Mはリン原子であってホスフォニウムイオンであるか、Mは窒素原子でかつ任意の $\text{R}_1$ 、 $\text{R}_2$ 、 $\text{R}_3$ 及び $\text{R}_4$ が環を形成したヘテロ芳香族イオンであって、 $\text{R}_1$ 、 $\text{R}_2$ 、 $\text{R}_3$ 及び $\text{R}_4$ の少なくとも一部がイミド置換炭化水素基であるで表される有機オニウムイオンによりイオン交換能対比50～100%イオン交換され、比表面積が2.5～100 m<sup>2</sup>/gであることを特徴とする層状珪酸塩。

2. (削除)

3. (削除)

4. ~~(補正後)~~ 有機オニウムイオンで交換した層状珪酸塩を、融点が－20℃以上100℃未満の媒体を用いて凍結乾燥させることを特徴とする請求項1に記載の層状珪酸塩の製造方法。

5. 融点が－20℃以上100℃未満の媒体が該層状珪酸塩の良分散体である事を特徴とする請求項4に記載の層状珪酸塩の製造方法。

6. ~~(補正後)~~ 熱可塑性樹脂と請求項1に記載の層状珪酸塩とからなる樹脂組成物

であって、層状珪酸塩の含有量が熱可塑性樹脂 100 重量部に対し、無機灰分として 0.01～20 重量部であり、熱可塑性樹脂中における該層状珪酸塩の平均層数が 2～8 層であることを特徴とする樹脂組成物。

- 5 7. 1 軸あるいは 2 軸押し出し機を使用して、層状珪酸塩を熱可塑性樹脂と共に熔融混練することによる請求項 6 に記載の樹脂組成物の製造方法。
8. 熱可塑性樹脂がポリエステル、ポリアミド、ポリイミド、ポリカーボネート、ポリフェニレンスルフィド、およびポリオレフィン系樹脂からなる群から選ばれ
- 10 る少なくとも一種である請求項 6 に記載の樹脂組成物。
9. 請求項 6 に記載の樹脂組成物からなるフィルム。